

**This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problems Mailbox.**

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 08-073709

(43)Date of publication of application : 19.03.1996

(51)Int.Cl. C08L 67/02
H01B 3/42
// (C08L 67/02
C08L 23:02
C08L101:00)

(21)Application number : 06-217396

(71)Applicant : TORAY IND INC

(22)Date of filing : 12.09.1994

(72)Inventor : IMAI SHIRO
KIMURA MASAHIRO

(54) ELECTRICAL INSULATING MATERIAL

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain an electrical insulating material excellent in heat resistance, mechanical properties, electrical properties, handleability and processability by mixing a polyester falling in a specific m.p. range with a thermoplastic elastomer and/or an amorphous polyolefin polymer.

CONSTITUTION: An electrical insulating material is in the form of a film comprising a polyester having a m.p. of 230 to 280° C and a thermoplastic elastomer and/or an amorphous polyolefin polymer mixed therewith at a wt. ratio of 70:30 to 98:2, and having a thickness of 1 to 500 μ . It is pref. that the polyester constituting the film be mainly made of polyethylene terephthalate or polyethylene naphthalate. This film can be not only singly used as an insulating material for a wide variety of uses in the whole range of electric and electronic apparatuses, such as taping for electric and electronic apparatuses, insulation in slots for mutual insulation of steps, use as a constituent material of a condenser, etc., but also used as one material of a composite material. for use in fabricated articles formed by laminating the film on cloth, paper, glass, or other inorg. insulating material.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平8-73709

(43) 公開日 平成8年(1996)3月19日

(51) Int.Cl. ⁸	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 8 L 67/02				
H 0 1 B 3/42	F			
// (C 0 8 L 67/02				
23:02				
101:00)				

審査請求 未請求 請求項の数6 O L (全 7 頁)

(21) 出願番号	特願平6-217396	(71) 出願人	000003159 東レ株式会社 東京都中央区日本橋室町2丁目2番1号
(22) 出願日	平成6年(1994)9月12日	(72) 発明者	今井 史朗 滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株式会社滋賀事業場内
		(72) 発明者	木村 将弘 滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株式会社滋賀事業場内

(54) 【発明の名称】 電気絶縁材料

(57) 【要約】

【構成】融点230～280℃のポリエステルと熱可塑性エラストマーおよび／または非晶ポリオレフィン重合体が重量比で70：30～98：2の割合で混合されており、厚み1～500μmのフィルムからなることを特徴とする電気絶縁材料。

【効果】本発明の電気絶縁用フィルムは、機械特性、電気特性に加え、取扱い性、加工適性に優れていることから、モータ絶縁のような絶縁用途で加工収率が向上でき、さらには信頼性の面でも良好であるという特徴を有する。本発明の電気絶縁用フィルムは、小型化、軽量化、高性能化の要求が強いモータ絶縁用途に好適に使用でき、また、モータ絶縁以外の電気絶縁用途にも好ましく使用することができる。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 融点 230℃～280℃のポリエステルと熱可塑性エラストマーおよび／または非晶ポリオレフィン重合体が重量比で 70:30～98:2 の割合で混合されてなり、厚み 1～500 μ m のフィルムからなることを特徴とする電気絶縁材料。

【請求項 2】 ポリエステルが主としてポリエチレンテレフタレートまたはポリエチレンナフタレートからなることを特徴とする請求項 1 に記載の電気絶縁材料。

【請求項 3】 熱可塑性エラストマーおよび／または非晶ポリオレフィン重合体の分散径比（＝長手方向平均分散径／厚み方向平均分散径）が 2～100 であることを特徴とする請求項 1 に記載の電気絶縁材料。

【請求項 4】 熱可塑性エラストマーがポリスチレン系コポリマーであることを特徴とする請求項 1 に記載の電気絶縁材料。

【請求項 5】 非晶ポリオレフィン重合体が、ジシクロペンタジエンの開環重合体の水素化物、ジシクロペンタジエンとエチレンとの共重合体の水素化物、ジシクロペンタジエンの反応生成物とエチレンとの共重合体の水素化物およびノルボルネン系重合体から選ばれた 1 種以上からなることを特徴とする請求項 1 に記載の電気絶縁材料。

【請求項 6】 フィルムのヤング率が 400 kg/mm² 以上であることを特徴とする請求項 1～請求項 5 のいずれかに記載の電気絶縁材料。

【発明の詳細な説明】**【0001】**

【産業上の利用分野】本発明は耐熱性、機械的特性、電気的特性に優れ、かつ、取扱い性や加工性に優れた電気絶縁材料に関するものである。

【0002】

【従来の技術】従来より、種々の分野における電気絶縁材料としては、その優れた機械的特性、電気的特性および加工性の点からポリエチレンテレフタレート（以下、PET ということがある）フィルムが広く用いられてきた。しかしながら、従来の PET フィルムからなる電気絶縁材料では、一定温度で加熱後の絶縁破壊の強さが小さくなるという欠点があった。例えば、ガス絶縁ケーブル用絶縁材料や、コンデンサの誘電体のような高温にさらされることがある用途に従来の PET フィルムからなる電気絶縁材料を用いると絶縁破壊が起きるおそれがあった。

【0003】さらに近年、電気および電子機器の小型化、軽量化、高性能化が切望されるようになり、このためにはポリエチレンテレフタレートの耐熱性（E 種、連続許容温度 120℃）では不十分であり、より優れた耐熱性を有する絶縁材料が望まれている。

【0004】ポリエチレンナフタレートフィルムはこの目的に適合した（F 種、連続許容温度 155℃）電気絶

縁材料であり、例えば、特公昭 53-35280 号公報、特公昭 54-1920 号公報、特開昭 48-53299 号公報、特開昭 49-132600 号公報、特開昭 49-32200 号公報、特開昭 50-133279 号公報等にその特性が記載されている。

【0005】このように、ポリエチレンナフタレートフィルム（以下、PEN ということがある）は、基本的に優れた耐熱性、機械的特性および電気特性を有することは広く知られており、上記ポリエチレンテレフタレートフィルムに比べて、強度やヤング率が高いという特徴を有する反面、伸度が低く、また、長時間熱履歴を受けた後の伸度低下が大きく、脆いという欠点を有していた。特に、絶縁材料においては、例えばモータ絶縁などで代表されるように、スロットやウエッジの形に成型され、挿入やコイルの巻回、およびコイル形成などが行われ使用されるが、その際に割れが発生しやすく、加工収率が悪いなど取扱性や加工性に劣るという問題があった。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、上記した従来技術の問題点を解消することにより、ポリマが本来有する優れた耐熱性、機械的特性、電気的特性を遺憾なく発現させ、かつ、取扱い性や加工性に優れた電気絶縁材料を提供することにある。

【0007】

【課題を解決するための手段】本発明の目的は、融点 230℃～280℃のポリエステルと熱可塑性エラストマーおよび／または非晶ポリオレフィン重合体が重量比で 70:30～98:2 の割合で混合されてなり、厚み 1～500 μ m のフィルムによって達成することができる。

【0008】好ましくは、前記記載のフィルムを構成するポリマが主としてポリエチレンテレフタレートまたはポリエチレンナフタレートからなるものによって達成することができる。

【0009】本発明は、上記構成をとることによりはじめて、ポリマが本来有する優れた耐熱性、機械的特性、電気的特性を有し、かつ、取扱い性や加工性に優れた電気絶縁材料を提供することが可能となったのである。

【0010】本発明では、特定の融点を有するポリエステルに適量の熱可塑性エラストマーおよび／または非晶ポリオレフィン重合体を混合したフィルムを得ることにより、全く意外なことではあるが、本来ポリエステルが持つポリマ特性を凌ぐ優れた耐熱性、機械的特性、電気的特性が得られることに加え、取扱い性や加工性が極めて良好となることを見出したものであり、その効果は従来技術に比べて非常に大きいものである。

【0011】本発明におけるポリエステルとは、ジカルボン酸成分とグリコール成分からなるポリマであり、ジカルボン酸成分としては、例えば、テレフタル酸、ナフタレンジカルボン酸、イソフタル酸、ジフェニルジカルボン酸、ジフェニルスルホンジカルボン酸、ジフェノキ

シエタンジカルボン酸、5-ナトリウムスルホイソフタル酸、フタル酸等の芳香族ジカルボン酸、シュウ酸、コハク酸、アジピン酸、セバシン酸、ダイマー酸、マレイン酸、フマル酸等の脂肪族ジカルボン酸、シクロヘキサジカルボン酸等の脂環族ジカルボン酸、p-オキシ安息香酸等のオキシカルボン酸等を挙げることができる。なかでもテレフタル酸、ナフタレンジカルボン酸が耐熱性、機械的特性、かつ電気的特性の点から好ましく、より高温での耐熱性を目的とするにはナフタレンジカルボン酸が特に好ましい。

【0012】一方、グリコール成分としては、例えば、エチレングリコール、プロパングリコール、ブタングリコール、ペンタングリコール、ヘキサングリコール、ネオペンチルグリコール等の脂肪族グリコール、シクロヘキサジメタノール等の脂環族グリコール、ビスフェノールA、ビスフェノールS等の芳香族グリコール等が挙げられる。なかでもこれらのグリコール成分のうちエチレングリコールが耐熱性、機械的特性、かつ電気的特性の点から好ましい。また、シクロヘキサジメタノールも高温下での絶縁破壊の強さが小さくならず、好ましい。これらのジカルボン酸成分、グリコール成分は2種以上を併用してもよい。

【0013】また、本発明の効果を阻害しない限りにおいて、トリメリット酸、トリメシン酸、トリメチロールプロパン等の多官能化合物を共重合したものをを用いてもよい。

【0014】本発明で使用するポリエステルとしては、融点として230～280℃であることが、耐熱性の点で必要である。融点はさらに好ましくは250～280℃、260～280℃の範囲のものがより好ましい。かかる好ましいポリマとしては、ポリエチレンテレフタレートまたはポリエチレンナフタレートのホモポリマ、あるいはコポリマを挙げることができる。ここで、構成単位であるポリエチレンテレフタレートまたはポリエチレンナフタレート単位が全ポリエステル構成単位中少なくとも70モル%含有されているのが、耐熱性、機械的特性、かつ電気的特性の点で好ましい。さらに好ましくは、80モル%以上含有されていることが望ましい。

【0015】また、本発明のポリエステルは、ジエチレングリコール成分を0.01～1.5重量%含有していることが好ましく、さらに好ましくは、0.01～1.2重量%、より好ましくは0.01～1.0重量%含有していることが、熱履歴によるポリエステルの劣化が抑えられることから好ましい。

【0016】ジエチレングリコール成分を0.01重量%未満とすることは重合工程が繁雑となり、コストの面で好ましくなく、また、1.5重量%を超えると長時間の熱履歴によりポリエステルの劣化が生じ、耐熱性が低下しやすい傾向にある。ジエチレングリコールはポリエ

ステル製造の際に副生するが、1.5重量%以下にするには、重合時間を短縮したり、重合触媒として使用されるアンチモン化合物、ゲルマニウム化合物などの量を限定する方法、液相重合と固相重合を組み合わせる方法、アルカリ金属成分を含有させる方法などがあげられるが、方法としては特に限定されるものではない。

【0017】なお、好ましくはポリエステルの極限粘度 $[\eta]$ が0.4～1.2の範囲、さらに好ましくは0.5～1.1、より好ましくは0.6～1.0で、機械特性を向上させることができる。

【0018】本発明では、ポリエステルに熱可塑性エラストマーおよび/または非晶ポリオレフィン重合体を重量比で70:30～98:2含有させることが、優れた耐熱性、機械的特性、かつ電気的特性に加え、取扱い性、加工性を良好なものとするために必要である。さらに耐熱性、機械的特性、電気的特性、取扱い性、加工性の点で、好ましくはポリエステルに混合させる熱可塑性エラストマーおよび/または非晶ポリオレフィン重合体の割合は、重量比で80:20～97:3、さらに好ましくは90:10～95:5である。このことは、ポリエステルに相溶しがたい熱可塑性エラストマーおよび/または非晶ポリオレフィン重合体が海島状に分散し、取扱い時や加工時の外からの力をショックアブソーパ的に吸収・分散し、高い耐衝撃力が得られるためと考えられ、その効果は大きい。また、非晶ポリオレフィン重合体が混合された場合にあっては、理由は定かではないが耐熱性が向上し、一定温度で加熱後の絶縁破壊の強さが低下することを防止する効果がある。特に湿度が高い雰囲気下での効果は大きい。

【0019】ここで、本発明でいう熱可塑性エラストマーとは、特に限定されないが、例えば超低密度、低密度ポリエチレン、エチレン- α オレフィンコポリマー（エチレン-ブテンコポリマー、エチレン-プロピレンコポリマー、エチレン-オクテンコポリマーなど）、プロピレン- α オレフィンコポリマー（プロピレン-ブテンコポリマーなど）、ポリブテンなどのオレフィン系エラストマー、SBS（スチレン-ブタジエン-スチレンコポリマー）、SEBS（スチレン-エチレン/ブチレン-スチレンコポリマー）、SIS（スチレン-イソプレン-スチレンコポリマー）、SEPS（スチレン-エチレン/プロピレンコポリマー）などのポリスチレン系エラストマー、さらにエチレン-メチルアクリレートコポリマー、エチレン-メチルメタクリレートコポリマーなどが挙げられる。

【0020】またポリエステル系熱可塑性エラストマーとしては、ハードセグメントが結晶性のポリブチレンテレフタレート、ソフトセグメントが脂肪族系のポリエーテルまたはポリエステルであるエステル/エーテルタイプコポリマー、エステル/エステルタイプコポリマーからなるものがその代表として例示することができるが、

ハートセグメントにジヒドロキシクォーターフェニルをソフトセグメントに脂肪族ポリエステルを用いたものもある。さらに、塩化ビニル系熱可塑性エラストマーや、ハードセグメントがポリアミド、ソフトセグメントがポリエーテルのブロックポリマーからなるポリアミド系熱可塑性エラストマー、フッ素ゴム成分とフッ化ビニリデン樹脂のような樹脂成分のブロックポリマーからなるフッ素熱可塑性エラストマー等を挙げることができる。

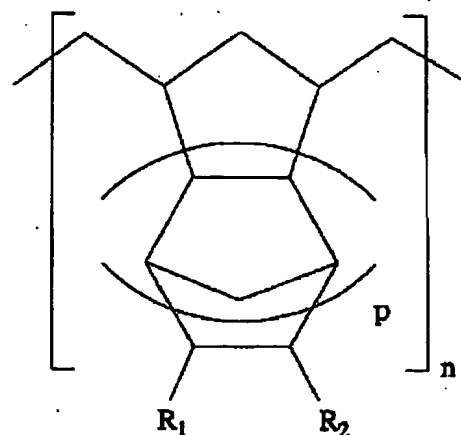
【0021】また、上記熱可塑性エラストマーはブロックコポリマー、ランダムコポリマーのいずれであってもよい。特に、ポリスチレン系コポリマーはポリエステルに対する分散性が良好で、低温での耐衝撃性に優れるので好ましい。

【0022】また、本発明の非晶ポリオレフィン重合体とは、一般には熱測定で結晶融点が観測されにくいもので、代表的なものとしてジシクロペンタジエンの開環重合体の水素化物、ジシクロペンタジエンとエチレンとの共重合体の水素化物、ジシクロペンタジエンの反応生成物とエチレンとの共重合体の水素化物およびノルボルネン系重合体から選ばれた1種以上のものをいう。かかる非晶ポリオレフィン重合体は、そのガラス転移点が100℃以上が好ましく、さらに好ましくは130℃以上で、吸水率が0.1%未満のものが好ましい。

【0023】ジシクロペンタジエンの開環重合体の水素化物は、従来から公知の物質で、例えば特公昭58-43412号公報、特開昭63-218727号公報などでよく知られている。またジシクロペンタジエンとエチレンとの共重合体は、特開昭63-314220号公報などで知られており、ノルボルネン系重合体はUSP2883372号、特公昭46-14910号公報、特開平1-149738号公報などに示されているようにジシクロペンタジエン類とジェノフィルとの混合物から4環体以上の多環ノルボルネン系化合物を得た後、重合体にしたものなどが知られている。もちろんジシクロペンタジエン類は、そのメチルやエチル置換体などのアルキル置換体や、エンド異性体、キキソ異性体またはこれらの混合物などを含むものである。分子量は1万以上、好ましくは3万以上、特に好ましくは5万以上と高い方が機械的、熱的特性が優れて好ましい。

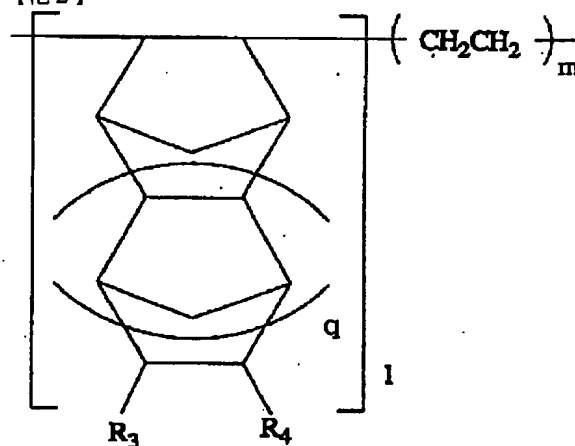
【0024】ノルボルネン系重合体としては、一般式(1)

【化1】



(但し、式中R₁ およびR₂ は水素、炭化水素残基またはハロゲン、エステル、ニトリル、ピリジルなどの極性基で、それぞれ同一または異なってもよく、またR₁ およびR₂ は互いに環を形成していてもよい。nは正の整数であり、pは0または正の整数である。) 及び/または一般式(2)

【化2】



(但し、式中R₃ およびR₄ は水素、炭化水素残基またはハロゲン、エステル、ニトリル、ピリジルなどの極性基で、それぞれ同一または異なってもよく、またR₃ およびR₄ は互いに環を形成していてもよい。l及びmは正の整数であり、qは0または正の整数である。) で表される構成単位を有するポリマーを挙げることができる。

【0025】一般式(1)で表される構成単位を有するポリマーは、単量体としては、例えば、ノルボルネン、およびそのアルキルおよび/またはアルキリデン置換体、例えば、5-メチル-2-ノルボルネン、5, 6-ジメチル-2-ノルボルネン、5-エチル-2-ノルボルネン、5-ブチル-2-ノルボルネン、5-エチリデン-2-ノルボルネン等のジシクロペンタジエン、2, 3-ジヒドロジシクロペンタジエン、これらのメチル、エチル、プロピル、ブチル等のアルキル置換体およびハロゲン等の極性基置換体のジメタノオクタヒドロナフタ

レン、そのアルキルおよび／またはアルキリデン置換体、およびハロゲン等の極性基置換体、例えば、6-メチル-1, 4:5, 8-ジメタノ-1, 4, 4a, 5, 6, 7, 8, 8a-オクタヒドロナフタレン、6-エチル-1, 4:5, 8-ジメタノ-1, 4, 4a, 5, 6, 7, 8, 8a-オクタヒドロナフタレン、6-エチリデン-1, 4:5, 8-ジメタノ-1, 4, 4a, 5, 6, 7, 8, 8a-オクタヒドロナフタレン、6-クロロ-1, 4:5, 8-ジメタノ-1, 4, 4a, 5, 6, 7, 8, 8a-オクタヒドロナフタレン、6-シアノ-1, 4:5, 8-ジメタノ-1, 4, 4a, 5, 6, 7, 8, 8a-オクタヒドロナフタレン、6-ピリジル-1, 4:5, 8-ジメタノ-1, 4, 4a, 5, 6, 7, 8, 8a-オクタヒドロナフタレン、6-メトキシカルボニル-1, 4:5, 8-ジメタノ-1, 4, 4a, 5, 6, 7, 8, 8a-オクタヒドロナフタレン等のシクロペンタジエンの3~4量体、例えば、4, 9:5, 8-ジメタノ-3a, 4, 4a, 5, 8, 8a, 9, 9a-オクタヒドロ-1H-ベンゾインデン、4, 11:5, 10:6, 9-トリメタノ-3a, 4, 4a, 5, 5a, 6, 9, 9a, 10, 10a, 11, 11a-ドデカヒドロ-1H-シクロペンタアントラセン等を1種または2種以上使用し、公知の開環重合方法により重合して得られる開環重合体を、通常の水素添加方法により水素添加して製造されるポリマーである。

【0026】一般式(2)で表される構造単位を有するポリマーは、単量体として、前記のごときノルボルネン系モノマーの1種以上と、エチレンを公知の方法により付加共重合して得られるポリマーおよび／またはその水素添加物であって、いずれも飽和ポリマーである。

【0027】また、ノルボルネン系ポリマーは、一般式(1)および一般式(2)の製造工程で、分子量調整剤として、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセンなどの α -オレフィンを存在させたり、あるいはシクロプロペン、シクロブテン、シクロペンテン、シクロヘプテン、シクロオクテン、5, 6-ジヒドロシクロペンタジエン等のシクロオレフィンなどの他のモノマー成分を少量成分として添加することにより、共重合したポリマーであってもよい。

【0028】さらに本発明では、ポリエステル中に分散した熱可塑性エラストマーおよび／または非晶ポリオレフィン重合体の分散径比(長手方向平均分散径/厚み方向平均分散径)が2~100であると耐衝撃性が特に良好となるので好ましい。

【0029】ここで、熱可塑性エラストマーおよび／または非晶ポリオレフィン重合体の分散径比は、例えばフィルム断面を切断し、厚さ0.1~1 μ m程度の超薄切片を作成し、透過型電子顕微鏡を用いて倍率5000~20000程度で写真(長手方向25cm×厚み方向2

0cmを10枚)を撮影し、ポリエステル中に分散した各熱可塑性エラストマーおよび／または非晶ポリオレフィン重合体(i)の長手方向径(x_i)、厚み方向径(y_i)および楕円相当面積(S_i)を測定する。その後、各方向について下記式を用いて、長手方向平均分散径(x_{av})、厚み方向平均分散径(y_{av})を求め分散径比($=x_{av}/y_{av}$)を得た。

$$【0030】 x_{av} = \sum x_i \cdot S_i / \sum S_i$$

$$y_{av} = \sum y_i \cdot S_i / \sum S_i$$

上記の分散径比を2~100とする方法は特に限定されないが、スクリュウの剪断力を高め混練性を大きくする方法、二軸押出機による押出、さらに二軸押出機のスクリュウに予め混練に適したスクリュウディメンション(例えばポリマをある程度長く滞留させる部分を設定し、そこでローターなどの混練性の高い形状を持ったもので練る方法)を設ける方法などが用いられる。

【0031】本発明のフィルムは、厚みが1~500 μ mの範囲、好ましくは10~300、さらに好ましくは20~200 μ mである。

【0032】また、本発明のフィルムは、絶縁破壊の強さや機械的特性等から二軸配向したフィルムが好ましい。かかるフィルムのヤング率は400kg/mm²以上であるのが好ましい。さらに好ましくは450kg/mm²以上である。ここでいうヤング率とは、フィルムのMD方向(長手方向)、TD方向(幅方向)の平均値であって、どちらか一方が極端に高くとも、平均値として、この範囲外であれば、フィルムの挿入性が不足したり、フィルム操作時のハンドリング性が低下し、取扱いにくかったり、機械特性が安定せず、劣ったりする傾向がある。この傾向はフィルムの厚みが薄くなればなるほど顕著となってくる。

【0033】また、本発明のフィルムの取扱い性、加工性を向上させるために、平均粒子径0.1~10 μ mの無機粒子および／または有機粒子が0.01~10重量%含有されていることが好ましく、さらには平均粒子径0.1~5 μ mの無機粒子および／または有機粒子が0.01~3重量%含有されていることがより好ましい。無機粒子および／または有機粒子としては、例えば、湿式シリカ、乾式シリカ、コロイド状シリカ、酸化チタン、炭酸カルシウム、リン酸カルシウム、硫酸バリウム、アルミナ、マイカ、カオリン、クレー等の無機粒子およびスチレン、シリコーン、アクリル酸類等を構成成分とする有機粒子等を挙げることができる。なかでも湿式または乾式シリカまたはコロイド状シリカ、アルミナ等の無機粒子およびスチレン、シリコーン、アクリル酸、メタクリル酸、ポリエステル、ジビニルベンゼン等を構成成分とする有機粒子が好ましい。これらの粒子は2種以上を併用してもよい。

【0034】次に、本発明のフィルムの製造方法について述べるがこれに限定されるものではない。まず、本発

明のポリエステル製造は、従来公知の任意の方法を採用することができ、特に限定されるものではない。例えば、ポリエチレンナフタレートの場合で説明する。ナフタレン-2, 6-ジカルボン酸ジメチルとエチレングリコールをエステル交換反応せしめ、次いで二酸化ゲルマニウムを添加し、引き続き高温、減圧下で一定のジエチレングリコール含有量になるまで重縮合反応せしめ、ゲルマニウム元素含有重合体を得る。かかるポリエステルを製造する際には、従来公知の反応触媒、着色防止剤を使用することができ、反応触媒としては例えばアルカリ金属化合物、アルカリ土類金属化合物、亜鉛化合物、鉛化合物、マンガン化合物、コバルト化合物、アルミニウム化合物、アンチモン化合物、チタン化合物、着色防止剤としては例えばリン化合物等を挙げることができる。次いで得られた重合体をその融点以下の温度において減圧下または不活性ガス雰囲気下で固相重合反応せしめ、所定の極限粘度のものを得ることができる。

【0035】しかる後、かかるポリエステルと、例えば、SEBS（スチレン-エチレン/ブチレン-スチレンブロックコポリマー）および/またはノルボルネン系樹脂を二軸ペント式の押出機に供給し溶融し、通常の口金から吐出後、鏡面または表面粗面化した冷却ドラムにて冷却固化してキャストフィルムを得る。この際、押出機内での剪断発熱を極力抑制する方法、或いは、溶融ポリマが空気に触れないよう窒素ガスシールする等の方法を講じることは好ましい方法である。

【0036】本発明のフィルムは、未延伸のシート状のものまたは一軸延伸フィルムでもかまわないが、機械特性、電気特性に加え、取扱性、加工適性の点から、好ましくは二軸に延伸された延伸フィルムである。かかる場合、未延伸シートを同時あるいは逐次に二軸延伸する。逐次二軸延伸の場合、長手方向あるいは幅方向の延伸を2回以上行うことも可能である。フィルムの長手方向および幅方向の延伸倍率は目的とするフィルムの配向度、強度、弾性率に応じて任意に設定することができるが、好ましくはそれぞれの方向に2.5～5.0倍である。長手方向、幅方向の延伸倍率はどちらを大きくしてもよく、また、同一としてもよい。また、延伸温度はポリエステルのガラス転移温度以上、結晶化温度以下の範囲であれば任意の温度に設定することができるが、通常は80～150℃が好ましい。さらに二軸延伸の後にフィルムの熱処理を行う。この熱処理はオープン中、加熱されたロール上等、従来公知の任意の方法で行うことができる。熱処理温度はポリエステルの結晶化温度以上融点以下の任意の温度とすることができるが、好ましくは150～250℃である。また、熱処理時間は任意とすることができるが、通常1～60秒間行うのが好ましい。熱処理はフィルムをその長手方向および/または幅方向に弛緩させつつ行ってもよい。

【0037】なお、本発明のフィルムを製造するにあた

り、必要により酸化防止剤、可塑剤、帯電防止剤、耐候剤、末端封鎖剤等の添加剤も適宜使用することができる。

【0038】本発明のフィルムは単体のままで電気および電子機器用テーピング、相段絶縁用スロット内絶縁、コンデンサ構成材料等、電気、電子機器全般に広く絶縁材料としての用途を有する他、布、紙、ガラス、その他無機質絶縁材料との積層による二次加工品の混成材料として用いてもよい。

【0039】

【特性の測定、評価法】フィルムの特性は以下の方法により測定、評価した。

【0040】（1）ポリエステルの極限粘度
ポリエステルをオルソクロロフェノールに溶解し、25℃において測定した。

【0041】（2）ポリエステルの融点
ポリエステルチップを結晶化させ、示差走査熱量計（パーキン・エルマ社製DSC-2型）により、10℃/min.の昇温速度で測定した。

【0042】（3）フィルムのヤング率
ASTM-D-882-81（A法）に準じて測定した（引張速度：300mm/分）。なお、値はフィルムのMD方向（長手方向）、TD方向（幅方向）の平均値として求めた。

【0043】（4）加工適性
フィルム長手方向に40mm、幅方向に20mmとなるようにフィルムを切り出し、ついで幅方向に平行に両端部を各5mmづつ折り返してモータ挿入用サンプルを作成した。このサンプルをモータ回転子部分に挿入し、エナメル線を巻き込んだ。その後エナメル部分をプレスしてエナメル線部分の成型を行い、この時にフィルムサンプルの割れの発生状態を評価した。

【0044】（5）絶縁破壊の強さ
JIS C2318-1966に従い、交流短時間昇圧法により測定した。

【0045】

【実施例】

実施例1

エチレン71.1モル%、DMOB（4・9, 5・8-ジメタノ-3a, 4, 4a, 5, 8, 8a, 9, 9a-オクタヒドロ-1H-ベンゾインデン：I）22.8モル%、DMOF（1・4, 5・8-ジメタノ-1, 4, 4a, 4b, 5, 8, 8a, 9a-オクタヒドロ-9H-フルオレン）6.1モル%からなる重合体を水素化して数平均分子量53000の非晶ポリオレフィン重合体を得た。

【0046】次いで、ポリエステルとして、ポリエチレン2, 6ナフタレート（融点265℃、極限粘度 $[\eta]$ 0.6）を用い、上記非晶ポリオレフィン重合体を重量比で90：10でブレンドし、二軸ペント式の押出機に

供給し溶融し、通常の口金から吐出後、冷却ドラムにて冷却固化してキャストフィルムを得た。ついで、逐次二軸延伸法により縦3.5倍、横3.7倍に延伸、熱処理を施し、厚み30 μ mの二軸配向フィルムを得た。フィルムのヤング率は600kg/mm²であった。

【0047】かくして得られたフィルムを用いて、加工適性を評価したところ、割れは全く発生せず良好な加工性を有していた。

【0048】また、得られたフィルムを160℃で1時間加熱した後の絶縁破壊の強さを評価したところ16.3kVであり、加熱前の絶縁破壊の強さ16.5kVに比べほとんど低下はみられなかった。

【0049】実施例2

ポリエステルとして、ポリエチレン2、6ナフタレート（融点265℃、極限粘度 $[\eta]$ 0.6）を用い、非晶ポリオレフィン重合体として、主としてジシクロペンタジエン系の開環重合体の水添物である日本ゼオン（株）製の“ゼオネックス”600を用い、これらを重量比で95:5でブレンドし二軸ベント式押出機に定量供給し、逐次二軸延伸を施し、厚み20 μ mの二軸配向フィルムを得た。フィルムのヤング率は620kg/mm²であった。

【0050】このフィルムを用いて、加工適性を評価したところ、割れは全く発生せず良好な加工性を有していた。

【0051】また、得られたフィルムを160℃で1時間加熱した後の絶縁破壊の強さを評価したところ10.8kVであり、加熱前の絶縁破壊の強さ11.0kVに比べほとんど低下はみられなかった。

【0052】実施例3

非晶ポリオレフィン重合体として、三井石油化学工業（株）製“アペル”APL6509（ガラス転移温度80℃）を用いる以外は実施例2と同様に加工し、厚み20 μ mの二軸配向フィルムを得た。フィルムのヤング率は625kg/mm²であった。

【0053】このフィルムを用いて、加工適性を評価したところ、割れは全く発生せず良好な加工性を有しており、また、耐熱性にも優れていた。

【0054】実施例4

ポリエステルとしてポリエチレンテレフタレート（融点255℃、極限粘度 $[\eta]$ 0.65）を用い、熱可塑性

エラストマーとしてSEBS（スチレン-エチレン/ブチレン-スチレンブロックコポリマー、S/EB比30/70）を用い、重量比で90:10でブレンドし二軸ベント式押出機に定量供給し、逐次二軸延伸を施し、厚み30 μ mの二軸配向フィルムを得た。フィルムのヤング率は410kg/mm²であった。

【0055】このフィルムを用いて、加工適性を評価したところ、割れは全く発生せず良好な加工性を有していた。

【0056】比較例1

ポリエステルとして、ポリエチレン2、6ナフタレート（融点265℃、極限粘度 $[\eta]$ 0.7）を単独で用いる以外は実施例1と同様に押出し、逐次二軸延伸を行い、厚み30 μ mの二軸配向フィルムを得た。フィルムのヤング率は680kg/mm²であった。このフィルムを用いて加工適性評価を行った結果、割れが発生し、加工性に劣るものであった。

【0057】比較例2

ポリエステルとして、ポリエチレン2、6ナフタレート（融点265℃、極限粘度 $[\eta]$ 0.7）とポリエチレンテレフタレート（融点255℃、極限粘度 $[\eta]$ =0.65）を重量比で80:20にブレンドし、実施例1と同様に同様に押し出し、逐次二軸延伸を行い、厚み30 μ mの二軸配向フィルムを得た。フィルムのヤング率は650kg/mm²であった。このフィルムを用いて加工適性評価を行った結果、比較例1のものより頻度が少ないものの割れの発生が認められ、加工性に劣るものであった。また、得られたフィルムを160℃で1時間加熱した後の絶縁破壊の強さを評価したところ14.5kVであり、加熱前の絶縁破壊の強さ16.3kVに比べ明らかに低下しているのが認められた。

【0058】

【発明の効果】本発明の電気絶縁用フィルムは、機械特性、電気特性に加え、取扱性、加工適性に優れていることから、モータ絶縁のような絶縁用途で加工収率が向上でき、さらには信頼性の面でも良好であるという特徴を有する。

【0059】本発明の絶縁フィルムは、小型化、軽量化、高性能化の要求が強いモータ絶縁用途に好適に使用でき、また、モータ絶縁以外の電気絶縁用途にも好ましく使用することができる。